

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-196076

(43)Date of publication of application : 19.07.2001

(51)Int.Cl.

H01M 8/02  
// H01M 8/10

(21)Application number : 2000-002383

(71)Applicant : NIPPON PILLAR PACKING CO LTD

(22)Date of filing : 11.01.2000

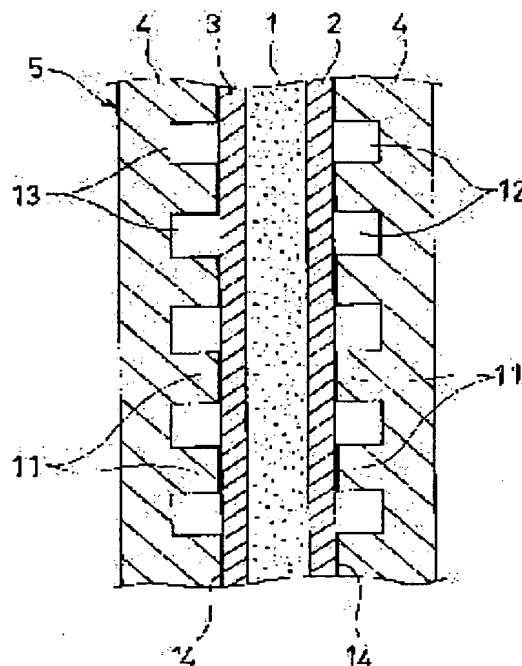
(72)Inventor : YOSHIDA TSUNEMORI

## (54) SEPARATOR FOR FUEL CELL

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To reduce contact resistance with an electrode and improve conductivity characteristics as total while maintaining excellent moldability using bond carbon compound of high resin content.

SOLUTION: Conductive film 14 of material of lower resistance than resistance of a carbon compound is coated on the top surface of a rib 11 contacting at least anode 2 and cathode 3 surfaces of a separator formed of the bond carbon compound set in a composition ratio of graphite powder 60-90%, thermosetting resin 10-40%.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 10.10.2000

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3706784

[Date of registration] 05.08.2005

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

특 2001-0070030

(19) 대한민국특허청(KR)  
(12) 공개특허공보(A)

(51) Int. Cl.  
H01M 2/14

(11) 공개번호 특2001-0070030  
(43) 공개일자 2001년07월25일

(21) 출원번호	10-2000-0048848
(22) 출원일자	2000년08월23일
(30) 우선권주장	2000-002383 2000년11월11일 일본(JP)
(71) 출원인	니폰 팔라고교 가부시키가이샤 미와나미 기요히사
(72) 발명자	일본국 오사카후 오사카시 요도가와구 노니카미나미 2-11-48 요시다스네토리
(74) 대리인	일본국효고현산다시시모우치가미야사우쓰바541-1니폰팔라고교가부시키가이샤 산다고조내 이은경, 이후동

심사청구 : 있음

(54) 연료 전지용 세퍼레이터

요약

수지량이 많은 본드 카본 화합물을 사용하여 우수한 성형성을 확보하면서, 전극와의 접촉 저항치를 작게 하여 전체로서 도전성의 향상이 도모되도록 하는 것을 목적으로 하여, 폭연 분말 60~90%, 열경화성 수지 10~40%의 조성 비율로 설정되어 있는 본드 카본 화합물에 의해 형성되어 있는 세퍼레이터의 적어도 애노드(2) 및 캐소드(3)의 표면에 접촉하는 리브부(11)의 정상 단면에, 본드 카본 화합물의 고유 저항치 보다 작은 고유 저항치의 재료로 이루어지는 도전성 피막(14)을 코팅하고 있다.

도표

도3

도4

도면의 간단한 설명

도 1은 본 발명의 세퍼레이터를 구비한 고체 고분자 전해질형 연료전지를 구성하는 스택 구조의 구성을 나타내는 분해사시도.

도 2는 상기 고체 고분자 전해질형 연료전지에 있어서의 세퍼레이터의 외관 정면도.

도 3은 상기 고체 고분자 전해질형 연료전지의 구성 단위인 단셀의 구성을 나타내는 요부의 확대 단면도.

도 4는 상기 세퍼레이터의 요부의 확대 단면도.

(도면의 주요 부분에 대한 부호의 설명)

1. 전해질막 2. 애노드(전극)
3. 캐소드(전극) 4. 세퍼레이터
14. 도전성 피막 20. 고체 고분자 전해질형 연료전지

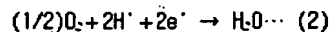
발명의 상세한 설명

발명의 목적

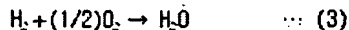
발명이 속하는 기술분야 및 그 분야의 종래기술

본 발명은, 주로 전기 자동차용의 전지로서 사용되는 연료전지용 세퍼레이터에 관하고, 더욱 상세하게는, 이온 교환막으로 이루어지는 전해질막을 양측으로부터 전극(애노드 및 캐소드)으로 끼워 샌드위치 구조로 한 가스 확산 전극을 그 외부 양측으로부터 끼움과 동시에, 양측의 전극과의 사이에, 수소를 함유하는 연료 가스 유로 및 산소를 함유하는 산화 가스 유로를 형성하여 연료 전지의 구성 단위인 단 셀을 구성하도록 이용되는 전해질형의 연료 전지용 세퍼레이터에 관한 것이다.

연료전지는, 애노드 및 캐소드에 연료 가스 및 산화 가스를 공급하는 것에 의해, 애노드 측 및 캐소드 측에 있어서,



로 이루어지는 식의 전기 화학 반응을 나타내고, 전지 전체로서는,



로 이루어지는 전기 화학 반응을 나타내고, 이와 같은 화학 반응에 의한 에너지를 전기 에너지로 변환하는 것에서 소정의 전지성을 발휘하는 것이다.

상기한 바와 같은 에너지 변환을 일으키는 전해질형의 연료 전지용 세퍼레이터에 있어서는, 가스 불투과성 외에 에너지의 변환 효율을 높게 함에 있어서 도전성에 우수한 재료로 형성하는 것이 요구되며, 그 요구에 적합한 재료로서, 종래로부터 흑연(카본)분말을 페놀수지 등의 열경화성 수지로 결합하여 이루어지는 복합체, 통칭, 본드 카본(수지 결합질 카본) 화합물을 사용하고, 이것을 소정 형상으로 형성하는 것에 의해 연료 전지용 세퍼레이터를 구성하고 있다.

그런데, 상기와 같은 본드 카본 화합물을 사용하여 소정 형상의 연료 전지용 세퍼레이터를 형성함에 있어서, 종래 일반적으로는, 본드 카본 화합물의 성형성을 증시하여, 페놀수지 등의 열경화성 수지와 흑연분말과의 조성 비율로 열경화성 수지량을 많게 한 본드 카본 화합물을 사용하고 있었다.

예를 들면, 생산성이 좋은 사출 성형의 경우에는, 수지량이 40% 정도로 되도록 한 조성 비율로 설정된 본드 카본 화합물이 사용되고 있었다.

그러나, 상기와 같이 수지량이 많은 조성 비율의 본드 카본 화합물을 사용하여 형성된 종래의 연료전지용 세퍼레이터에 있어서는, 본드 화합물이 유동성에 우수한 것에서, 성형성이 좋게 되는 반면, 전기절연체인 열경화성 수지량이 많기 때문에, 그만큼 세퍼레이터 구성재인 본드 카본 화합물 자체의 고유저항치가 크게 된다.

특히, 성형수단으로서 생산성이 좋은 사출성형을 채용하는 경우에는, 수지량을 40% 정도의 조성 비율로 설정할 필요가 있기 때문에 본드 카본 화합물의 고유 저항치는  $1 \times 10^{-1} \sim 1 \Omega \cdot cm$  까지 큰 쪽으로 상승한다.

또한, 상기의 고유 저항치는 세퍼레이터 구성재료가 갖고 있는 특성이며, 세퍼레이터의 저항치는, 그 이외에 내부 저항, 접촉저항에도 크게 좌우되는 바, 그 중에서도 전극과의 접촉 저항치가 가장 큰 영향을 주는 것이며, 이 점이 고려되어 있지 않은 종래의 세퍼레이터에 있어서의 저항치는, 어디까지나 수지량이 많은 조성 비율의 본드 카본 화합물 자체가 갖는 큰 고유 저항치 그대로로서, 전극과의 접촉부의 전기 저항이 크게 되어 연료 전지의 성능면에서 바람직하지 않다.

한편, 세퍼레이터 구성재료가 본드 카본 화합물 자체의 고유 저항치를 작게 하여 연료전지용 세퍼레이터의 도전성을 향상시키기 위해, 열경화성 수지량을 적게 하는 것이 고려되지만, 이와 같이 열경화성 수지량을 적게 한 본드 카본 화합물을 사용하면, 성형시의 본드 카본 화합물의 성장이나 유동성이 나쁘게 되어 성형성이 저하하고, 성형 불균일 등이 생기기 쉬워 형성면에서 정상인 성형체(세퍼레이터)를 얻을 수가 없을 뿐만 아니라, 전극과의 접촉면의 높이 균일성, 평면성이 성형 공정의 정밀도에 크게 영향되기 때문에, 본드 카본 화합물 자체의 고유 저항을 작게 하여도 접촉 저항치는 커, 세퍼레이터의 도전성을 충분히 향상시키는 것은 어려웠다.

따라서, 종래의 연료전지용 세퍼레이터는, 성형성을 증시하여, 기술한 바와 같이, 수지량이 많은 조성 비율의 본드 카본 화합물을 사용하는 것이 일반적으로 채용되고 있으며, 그 결과, 본드 카본 화합물 자체의 고유 저항치가 커, 연료 전지의 성능을 크게 좌우할 만큼 전극과의 접촉 저항치도 필연적으로 크게 되어 도전성에 약하다는 문제가 있었다.

#### 발명이 이루고자 하는 기술적 과제

본 발명은 상기 실정에 감안하여 이루어진 것으로서, 수지량이 많은 본드 카본 화합물을 사용하여 우수한 성형성을 확보하면서, 전극과의 접촉 저항치를 작게하여 전체적으로 도전성의 향상을 도모할 수가 있는 연료전지용 세퍼레이터를 제공하는 것을 목적으로 하고 있다.

#### 발명의 구성 및 작용

상기 목적을 달성하기 위해, 본 발명에 관계하는 연료 전지용 세퍼레이터는, 흑연 분말을 열경화성 수지로 결합하여 이루어지는 복합체로 구성되는 전해질형의 연료 전지용 세퍼레이터로서, 상기 복합체가, 흑연분말 60~90%, 열경화성 수지 10~40%의 조성 비율로 설정되어 있음과 동시에, 적어도 전극과의 접촉 단면에는, 상기 복합체의 고유 저항치 보다도 작은 고유 저항치의 재료로 이루어지는 도전성 피막이 코팅되어 있는 것을 특징으로 하는 것이다.

상기 구성의 본 발명에 의하면, 복합체에 있어서의 열경화성 수지를 10~40%로 많게 한 조성 비율의 본드 카본 화합물을 사용하는 것에 의해, 성형시의 성장이나 유동성을 양호하게 하여 사출성형에 의해서도 소망하는 형상의 성형체(세퍼레이터)가 얻어진다는 우수한 성형성을 확보하면서, 도전성 피막의 존재에 의해 성형체와 전극과의 접촉저항치를 작게 하고, 연료전지로서의 소정 성능을 충분히 발휘시킴에 의한 도전성의 향상을 도모하는 것이 가능하다.

상기 구성의 연료전지용 세퍼레이터에 있어서, 상기 도전성 피막의 두께를  $10 \mu m$  이하, 바람직하게는  $3 \mu m$  이하로 설정하는 것에 의해, 이 피막의 평면 정밀도를 세퍼레이터 자체의 성형 정밀도에 영향되지 않고 높이는 것이 가능하게 되며, 전극과의 사이의 접촉저항치를 바라는 만큼 작게 할 수가 있다.

또, 상기 구성의 연료 전지용 세퍼레이터에 있어서의 상기 도전성 피막의 재료로서는, 도전성 흑연 페이스트, 금 페이스트 또는 은 페이스트와 같은 본드 카본 화합물의 고유 저항치보다도 작은 고유 저항치의 재료면 되며, 또한 그 코팅수단으로서, 스프레이, 증착, 프린트 인쇄 또는 도포의 어느 수단이며도, 표면이 평활하고, 또한 전극과의 순연성에 우수한 것이면 좋다.

또한, 본 발명에서 사용되는 열경화성 수지로서는, 흑연 분말과의 습윤성에 우수한 페놀수지가 가장 바람직하지만, 그 이외에도, 폴리 카르보디 이미드(poly-carbodiimide)수지, 에폭시 수지, 퍼프릴(furfuryl) 알콜 수지, 노소 수지, 멜라민(melamine) 수지, 불포화 폴리메스테르 수지, 알키드 수지 등과 같이, 가열시에 열경화 반응을 일으키고, 연료 전지의 운전 온도 및 공급 가스 성분내 대하여 안정된 것이면 좋다.

또, 본 발명에서 사용되는 흑연 분말로서는, 천연 흑연, 인조 흑연, 카본 블랙, 키시(kish)흑연, 팽창흑연 등으로 이루어지는 종류의 것이라도 좋으며, 비용 등의 조건을 고려하여 임의로 선택할 수가 있다.

특히, 본 발명에 있어서 팽창흑연을 사용하는 경우에는, 그 흑연이 가열에 의해 체적 팽창하는 것으로 층 구조를 형성한 것이며, 성형 면압을 가하는 것에 의해 그를 층이 상호 얹혀 강고히 결합시키는 것이 가능하기 때문에, 복합체, 나아가서는 세퍼레이터의 굴곡 강성을 높여 진동 등에 의한 균열이나 부서짐 등의 손상 방지에 유효하다.

(실시예)

이하, 본 발명의 실시형태를 도면에 기초하여 설명한다.

먼저, 본 발명의 세퍼레이터를 구비한 고체 고분자 전해질형 연료전지의 구성 및 동작에 대하여 도 1~도 3을 참조하여 간단히 설명한다.

고체 고분자 전해질형 연료전지(20)는, 예를 들면 불소계 수지로 형성된 미온 교환막인 전해질 막(1)과, 탄소성유계로 적조한 카본 블로스나 카본 페이퍼 혹은 카본 펠트에 의해 형성되며, 상기 전해질 막(1)을 양측으로부터 끼워 샌드위치 구조를 이루는 가스 확산전극으로 되는 애노드(2) 및 캐소드(3)와, 그 샌드위치 구조를 또한 양측으로부터 끼는 세퍼레이터(4, 4)로 구성되는 단셀(5)의 복수조를 적층하고, 그 양단에 도식 생략한 집전판을 배치한 스택 구조로 구성되어 있다.

상기 양 세퍼레이터(4)는, 도 2에 명시한 바와 같이, 그 주변부에, 수소를 함유하는 연료가스구멍(6, 7)과 산소를 함유하는 산화가스구멍(8, 9)과 냉각수구멍(10)이 형성되어 있으며, 상기 단셀(5)의 복수조를 적층할 때, 각 세퍼레이터(4)의 각 구멍(6, 7, 8, 9, 10)이 각각 연료 전지(20) 내부를 그 길이방향으로 관통하여 연료 가스 공급 분기관(manifold), 연료 가스 배출 분기관, 산화 가스 공급 분기관, 산화 가스 배출 분기관, 냉각수로를 형성하도록 이루어져 있다.

또, 상기 양 세퍼레이터(4)의 표면에는, 소정 형상의 다수의 리브부(11)가 돌출 형성되어 있으며, 도 3에 나타내는 바와 같이, 이들 리브부(11)와 애노드(2)의 표면 사이에 연료 가스 유로(12)가 형성되어 있음과 동시에, 리브부(11)와 캐소드(3)의 표면 사이에 산화 가스 유로(13)가 형성되어 있다.

상기 구성의 고체 고분자 전해질형 연료전지(20)에 있어서는, 외부에 설치된 연료가스 공급장치로부터 연료전지(20)에 대하여 공급된 수소를 함유하는 연료가스가 상기 연료가스 공급 분기관을 경유하여 각 단셀(5)의 연료가스유로(12)에 공급되며 각 단셀(5)의 애노드(2)측에 있어서 기술한 (1)식으로 나타낸 바와 같은 전기화학 반응을 나타내고, 그 반응 후의 연료가스는 각 단셀(5)의 연료가스유로(12)로부터 상기 연료가스 배출 분기관을 경유하여 외부로 배출된다.

동시에, 외부에 설치된 산화가스 공급장치로부터 연료전지(20)에 대하여 공급된 산소를 함유하는 산화가스(공기)가 상기 산화가스 공급 분기관을 경유하여 각 단셀(5)의 산화가스유로(13)에 공급되며 각 단셀(5)의 캐소드(3)측에 있어서 기술한 (2)식으로 나타낸 바와 같은 전기화학 반응을 나타내며, 그 반응 후의 산화가스는 단셀(5)의 산화가스유로(13)로부터 상기 산화가스 배출 분기관을 경유하여 외부로 배출된다.

상기 (1) 및 (2)식의 전기화학 반응에 수반하여, 연료전지(20) 전체로서는 기술한 (3)식으로 나타낸 전기화학 반응이 진행하며, 연료가 갖는 화학 에너지를 직접 전기에너지로 교환하는 것에서, 소정의 전지 성능이 발휘된다.

또, 이 연료전지(20)는, 전해질막(1)의 성질로부터 약 80~100℃의 온도 범위로 운전되기 때문에 발열을 수행한다.

그래서, 연료전지(20)의 운전 중은, 외부에 설치된 냉각수 공급장치로부터 그 연료전지(20)에 대하여 냉각수를 공급하고, 이것을 상기 냉각수유로에 순환시키는 것에 의해, 연료전지(20) 내부의 온도상승을 억제하고 있다.

상기한 바와 같은 구성 및 동작을 갖는 고체 고분자 전해질형 연료전지(20)에 있어서의 세퍼레이터(4)는, 다음과 같이 구성되어 있다.

즉, 이 세퍼레이터(4)는, 흑연분말 60~90%, 열경화성 수지로서의 페놀수지 10~40%의 조성 비율로 설정한 복합체(본드 카본 화합물)를 사용하여 성형되는 것으로서, 상기 흑연 분말과 페놀수지를 균일하게 혼합하고 조정하여 작성된 화합물을 소정 형상을 갖는 금형(도시생략)내에 충전하고, 이 상태에서, 금형을 가열 승온함과 동시에, 프레스를 통하여 300~1000kgf/cm<sup>2</sup>(2.94×10<sup>7</sup>~9.8×10<sup>7</sup>Pa) 범위의 면압을 가하는 것에 의해, 금형의 형상에 따른 최종형상의 세퍼레이터(4)를 성형한다.

상기와 같이 성형된 세퍼레이터(4)에 있어서, 애노드(2) 및 캐소드(3)의 표면에 접촉하도록 세퍼레이터(4)의 표면에 돌출 형성되어 있는 다수의 리브부(11)의 정상 단면에, 도 4에 명시한 바와 같이, 본드 카본 화합물(복합체)의 고유 저항치(1×10<sup>-1</sup>~1Ω·cm)보다도 작은 고유저항치(1×10<sup>-8</sup>~1×10<sup>-4</sup>Ω·cm)의 재료, 구체적으로는 도전성 흑연 페이스트, 금 페이스트 또는 은 페이스트를 스프레이, 증착, 프린트 인쇄 또는 도포하여 건조시켜 10μm 이하, 바람직하게는 3μm 이하의 두께로 표면이 평활한 도전성피막(14)을

코팅하고 있다.

이상과 같은 구성을 갖는 세퍼레이터(4)에 있어서는, 그 세퍼레이터(4)의 구성재료인 본드 카본 화합물에 있어서의 조성 비율에 있어서 페놀수지량이 10~40%로 많기 때문에, 성형시의 성장이나 유동성이 좋아 사출성형에 의해서도 소망 형상의 성형체(세퍼레이터)가 얻어진다는 우수한 성형성을 확보하면서, 애노드(2) 및 캐소드(3)의 표면에 고유저항치가 작고, 또한 평면 정밀도가 높은 도전성 피막(14)이 정복하기 때문에, 세퍼레이터(4)와 애노드(2) 및 캐소드(3)와의 접촉부의 전기저항치가 대단히 작게 되므로, 세퍼레이터(4) 전체의 도전성을 향상시켜 연료 전지의 성능 향상을 도모하는 것이 가능하다.

또, 상기 실시형태에서는, 도전성 피막(14)을 세퍼레이터(4)의 표면에 몰출 형성되어 있는 다수의 리브부(11)의 정상 단면에만 코팅한 것에 대하여 설명하였지만, 세퍼레이터(4)의 표면 전역에 코팅하여도 좋다.

또한, 상기 실시형태에서는, 세퍼레이터(4)의 표면에 다수의 리브부(11)를 종횡으로 점점이 존재하도록 형성한 것에 대하여 설명하였지만, 긴 물기의 리브부를 종횡의 어느 방향인가 한쪽으로 정렬시켜 몰출 형성하여 이루어지는 세퍼레이터에 있어서, 그 긴 물기의 리브부의 몰출 정상 단면에 도전성 피막(14)을 코팅시킨 구성이어도 좋다.

#### 효과의 효과

이상과 같이, 본 발명에 의하면, 흑연 분말과 열경화성 수지로 이루어지는 복합체에 있어서의 조성 비율에 있어서 열경화성 수지량을 10~40%로 많게 한 본드 카본 화합물의 사용에 의해, 성형시의 성장이나 유동성을 양호하게 하며 사출성형의 경우에도 소망 형상의 성형체(세퍼레이터)가 확실하게 얻어진다는 우수한 성형성을 확보하면서, 적어도 전극과의 접촉 단면에 본드 카본 화합물이 가진 고유의 저항치보다도 작은 고유 저항치의 도전성 피막을 코팅하는 것으로 수지량이 많은 것에서 세퍼레이터로서의 저항치 중, 성능상 가장 큰 영향을 받는 성형체와 전극 접촉부의 접촉 저항치를 대단히 작게 할 수가 있어, 이에 의해 수지량이 많은 본드 카본 화합물로 고정밀도로 형성된 세퍼레이터 전체로서의 도전성을 현저히 향상시키고, 연료 전지로서의 소정 특성을 충분히 발휘시킬 수가 있다는 효과를 나타낸다.

특히, 도전성 피막의 두께를 10 $\mu$ m 이하, 바람직하게는 3 $\mu$ m 이하로 얇게 하는 것에 의해, 그 도전성 피막의 평면성을 세퍼레이터 자체의 성형 정밀도에 영향되지 않게 높은 실접촉 면적을 크게 취할 수가 있어, 피막 그 자체의 고유 저항치가 작음과 동시에 전극과의 접촉 저항치를 대단히 작게 할 수가 있다.

#### (5) 청구의 범위

##### 청구항 1

흑연 분말을 열경화성 수지로 결합해서 이루어지는 복합체로 구성되는 전해질형의 연료전지용 세퍼레이터로서,

상기 복합체가, 흑연 분말 60~90%, 열경화성 수지 10~40%의 조성 비율로 설정되어 있음과 동시에,

적어도 전극과의 접촉 단면에는, 상기 복합체의 고유 저항치 보다도 작은 고유 저항치의 재료로 이루어지는 도전성 피막이 코팅되어 있는 것을 특징으로 하는 연료 전지용 세퍼레이터.

##### 청구항 2

제 1항에 있어서,

상기 도전성 피막이, 10 $\mu$ m 이하의 두께로 설정되어 있는 연료 전지용 세퍼레이터.

##### 청구항 3

제 2항에 있어서,

상기 도전성 피막이, 3 $\mu$ m 이하의 두께로 설정되어 있는 연료 전지용 세퍼레이터.

##### 청구항 4

제 1항 내지 제 3항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 도전성 피막이, 도전성 흑연 페이스트, 금 페이스트 또는 은 페이스트를 스프레이, 증착, 프린트 인쇄 또는 도포하는 것에 의해 코팅되어 있는 연료 전지용 세퍼레이터.

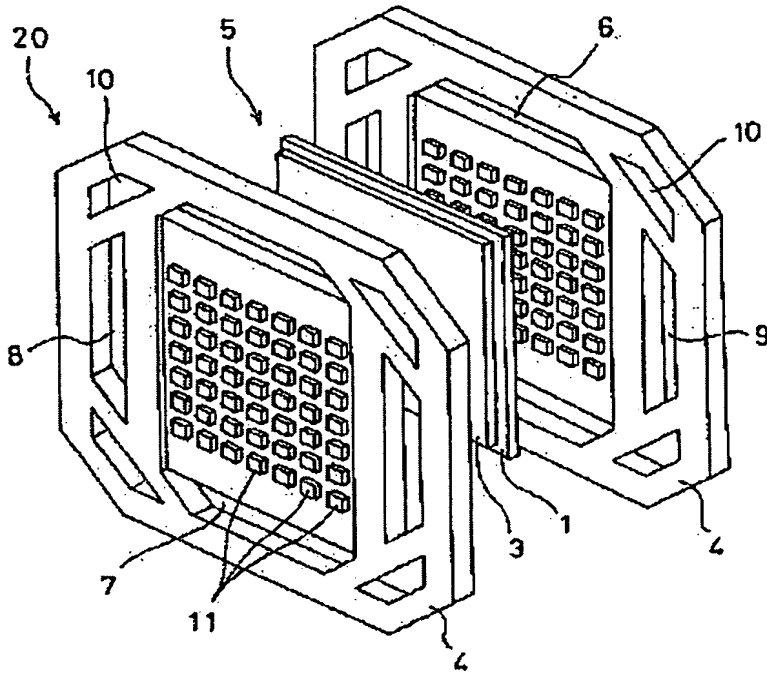
##### 청구항 5

제 1항 내지 제 3항 중 어느 한 항에 있어서,

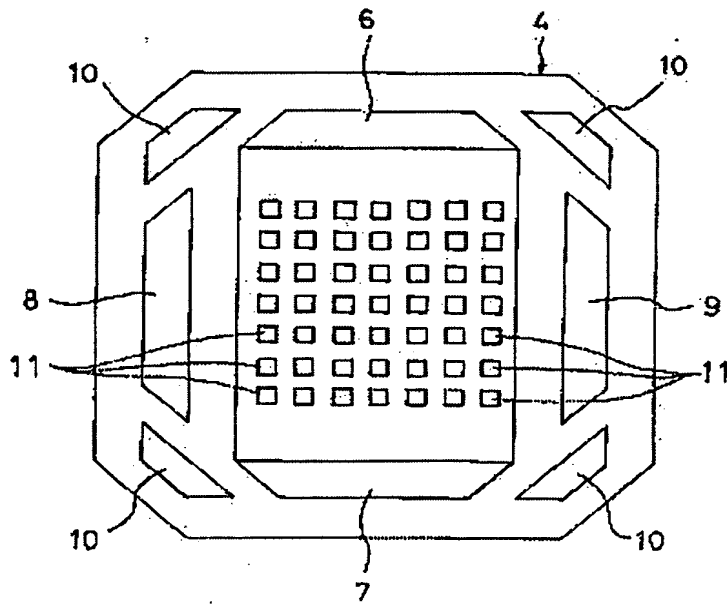
상기 열경화성 수지가, 페놀 수지인 연료 전지용 세퍼레이터.

도면

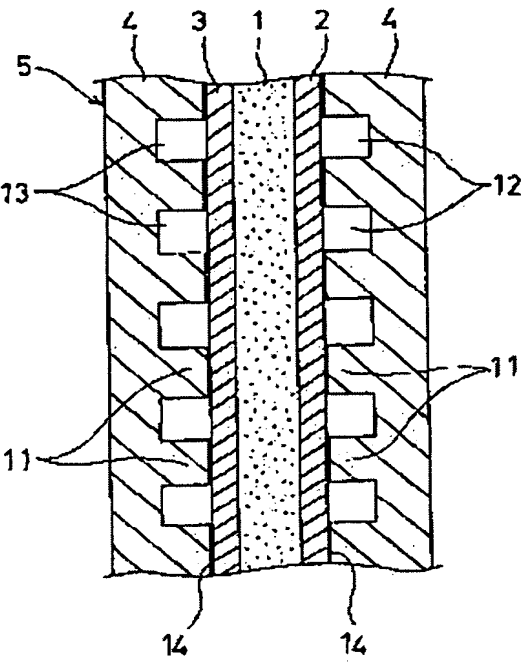
도면1



도면2



도 3



도 4

